

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: 09131828 A

(43) Date of publication of application: 20.05.97

(51) Int. Cl

**B32B 15/08**  
**B29C 67/04**  
**B29C 69/00**  
**B32B 5/14**  
**C08K 3/08**

(21) Application number: 07291445

(22) Date of filing: 09.11.95

(71) Applicant:

KANEKA FUCHI CHEM IND CO LTD

(72) Inventor:

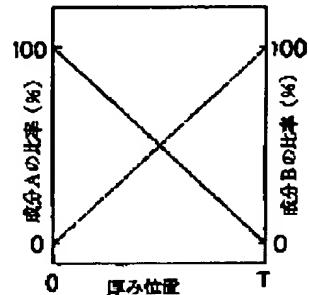
NOJIRI HITOSHI  
SEZAKI KOJI  
HIRAI TOSHIO  
OMORI MAMORU

(54) FUNCTIONALLY GRADIENT MATERIAL AND  
MANUFACTURE THEREOF

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a functionally gradient material containing metal and polymer material by using the metal high higher sintering temperature and a method for manufacturing the material.

SOLUTION: The functionally gradient material comprises a polymer material having no thermoplasticity and metal, a layer at least containing metal, a layer containing both the metal and the polymer material, and a layer containing only the polymer material. Or, the gradient material comprises a polymer material having no thermoplasticity and metal, and an intermediate layer that the gradient ratio of the metal to the polymer material is continuously or stepwisely changed between the layer containing only the metal and the layer containing only the polymer material. These gradient materials is manufactured by the steps of mixing the powder particles of the polymer material having no thermoplasticity and the powder particles of the metal at different ratio, charging it in a mold while continuously or stepwisely changing the ratio, and then molding it by a discharge plasma sintering method.



(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-131828

(43)公開日 平成9年(1997)5月20日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>  
B 3 2 B 15/08  
B 2 9 C 67/04  
69/00  
B 3 2 B 5/14

識別記号 庁内整理番号  
8413-4F  
8413-4F  
B 3 2 B 5/14

F I  
B 3 2 B 15/08  
B 2 9 C 67/04  
69/00  
B 3 2 B 5/14

技術表示箇所  
D  
R

審査請求 未請求 請求項の数 8 OL (全 7 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平7-291445

(22)出願日 平成7年(1995)11月9日

(71)出願人 000000941

鐘淵化学工業株式会社  
大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号

(72)発明者 野尻 仁志

滋賀県大津市比叡辻2-1-2-135

(72)発明者 瀬崎 好司

滋賀県大津市馬場3丁目14-40-408

(72)発明者 平井 敏雄

宮城県仙台市泉区高森3-4-91

(72)発明者 大森 守

宮城県仙台市泉区高森1-1-42

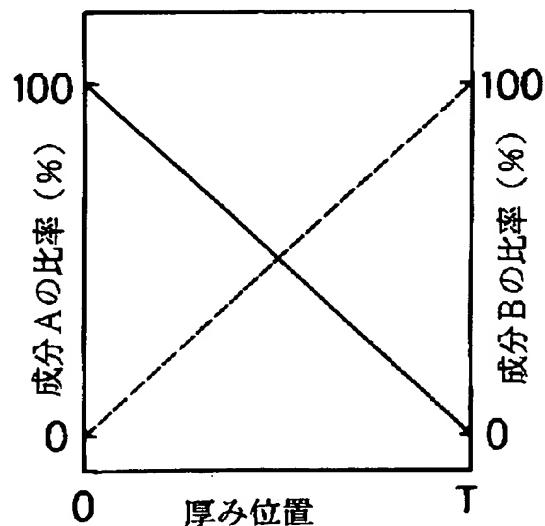
(74)代理人 弁理士 楠本 高義

(54)【発明の名称】 傾斜機能材料及びその製造方法

(57)【要約】

【課題】 焼結温度のより高い金属を用い、その金属と高分子材料から成る傾斜機能材料とその製造方法を得ることにある。

【解決手段】 热可塑性を有しない高分子材料と金属とからなり、少なくとも、金属のみからなる層、金属と高分子材料の両方を含む層、高分子材料のみからなる層を有する傾斜機能材料を構成した。また、熱可塑性を有しない高分子材料と金属とからなり、該金属のみからなる層と該高分子材料のみからなる層との間に、金属と高分子材料の成分比が連続的または階段状に変化する中間層を有する傾斜機能材料を構成した。そして、これら傾斜機能材料は、熱可塑性を有しない高分子材料の粉粒体と金属の粉粒体とを異なる比率で混ぜ合わせ、該比率を連続的又は階段状に変化させつつ型内に充填した後、放電プラズマ焼結法により成型することにより製造した。



**【特許請求の範囲】**

**【請求項1】** 熱可塑性を有しない高分子材料と金属とからなり、少なくとも、金属のみからなる層、金属と高分子材料の両方を含む層、高分子材料のみからなる層を有することを特徴とする傾斜機能材料。

**【請求項2】** 熱可塑性を有しない高分子材料と金属とからなり、該金属のみからなる層と該高分子材料のみからなる層との間に、金属と高分子材料の成分比が連続的または階段状に変化する中間層を有することを特徴とする傾斜機能材料。

**【請求項3】** 前記金属が前記高分子材料の熱分解温度より約100℃高い温度以下、より好ましくは、該高分子材料の熱分解温度以下の焼結温度を有するものであることを特徴とする請求項1または請求項2記載の傾斜機能材料。

**【請求項4】** 前記金属が銅またはアルミニウムであることを特徴とする請求項1乃至請求項3記載の傾斜機能材料。

**【請求項5】** 前記熱可塑性を有しない高分子材料が非熱可塑性型のポリイミドであることを特徴とする請求項1乃至請求項4記載の傾斜機能材料。

**【請求項6】** 熱可塑性を有しない高分子材料の粉粒体と金属の粉粒体とを異なる比率で混ぜ合わせ、該比率を連続的又は階段状に変化させつつ型内に充填した後、放電プラズマ焼結法により成型することを特徴とする傾斜機能材料の製造方法。

**【請求項7】** 前記高分子材料の粉粒体と金属の粉粒体とを遠心分離法により拡散させながら型内に充填することを特徴とする請求項6に記載する傾斜機能材料の製造方法。

**【請求項8】** 前記高分子材料の粉粒体と金属の粉粒体とを振動を加えながら型内に充填することを特徴とする請求項6に記載する傾斜機能材料の製造方法。

**【発明の詳細な説明】****【0001】**

**【発明の属する技術分野】** 本発明は傾斜機能材料とその製造方法に関し、より詳しくは高耐熱性高分子／金属系傾斜機能材料に関する。

**【0002】**

**【従来の技術】** 傾斜機能材料は一般に性質の異なる2種の素材を組み合わせて、各々単独の層の中間に、両成分比が連続的または階段状に変化するように成形されたものであり、新しい機能材料として開発が進められている。この傾斜機能材料の作製にあたっては、焼結法、溶射法、CVD・PVD法等の種々の方法が採用されているが、これらのなかで、作製し得る成形体の大きさに関する自由度が高く、しかも比較的大きな成形体を得る方法としては、焼結法が適している。この焼結法により作製される傾斜機能材料としては、従来、金属／セラミック系もしくはセラミック／セラミック系が中心であつ

た。

**【0003】** ところで、近年、セラミックの代わりに、熱可塑性高分子の優れた特性から、様々な分野において有用に使用されている熱可塑性高分子を用いた傾斜機能材料の開発が進められており、熱可塑性高分子／金属系傾斜機能材料が提案されている。これは、有機高分子の中で熱可塑性高分子は融点または軟化点を有し、一定温度以上に加熱することによって流動性を生じ、種々の方法で成型することが可能であることによる。より具体的には、フッ素樹脂と金属の傾斜機能材料（特公平5-18860号）や、高分子材料として耐熱性の高い熱可塑性ポリイミドと焼結温度の低い金属との傾斜機能材料（ニューセラミックス1994、No. 7、p 27）が提案されている。

**【0004】**

**【発明が解決しようとする課題】** しかしながら、このような熱可塑性高分子／金属系の傾斜機能材料を作製する場合の最大の課題は、焼結温度の異なる素材の両方を同時に緻密化して成型することにある。ところが、熱可塑性高分子を使用した場合、焼結時の温度や圧力を上げると樹脂が流れ出てしまうため、どうしても緻密化に限界があった。また、熱可塑性高分子は成型後であっても、一定の温度以上になると軟化するため、耐熱性が要求される用途では使用することができないという問題もあった。さらに、高分子の耐熱性から加熱できる温度に限界があり、このため、使用できる金属についてもその温度以下、すなわち400℃以下の比較的低い焼結温度を有する銀等のごく限られた金属のみであった。

**【0005】** 一方、有機高分子のなかで、非熱可塑性高分子は、基本的には熱可塑性高分子と同様な線状高分子であるにもかかわらず、軟化点を有さず、分解開始温度も高い。このため、非常に高い耐熱性を有し広範な用途において使用することができるため広い利用分野が考えられる。しかし、この非熱可塑性高分子は熱により軟化しないため、成型することは困難であった。また、従来の焼結法や他の成型方法では、金属・非熱可塑性高分子の両方を緻密に成型することは困難であることから、これまで、非熱可塑性高分子は傾斜機能材料の機能要素としては考えられていなかった。

**【0006】** しかしながら、本発明者らは、非熱可塑性高分子の優れた特性に着目し、耐熱性の高い非熱可塑性高分子を用いることにより、焼結温度のより高い金属を用いることが可能となり、両者による傾斜機能材料を得ることによって、一層、高機能の傾斜機能成形体を提供することが可能となることから、鋭意研究開発に努めた。その結果、本発明者らは傾斜機能材料の機能要素としてはこれまで考えられていなかった非熱可塑性高分子と金属を用い、放電プラズマ焼結法を用いることによって、比較的低圧力で非熱可塑性高分子と金属がともに緻密に成型されることを見出し、本発明に至ったのであ

る。

**【0007】**

【課題を解決するための手段】本発明に係る傾斜機能材料の要旨とするところは、熱可塑性を有しない高分子材料と金属とからなり、少なくとも、金属のみからなる層、金属と高分子材料の両方を含む層、高分子材料のみからなる層を有することにある。

**【0008】**また、本発明に係る傾斜機能材料の他の要旨とするところは、熱可塑性を有しない高分子材料と金属とからなり、該金属のみからなる層と該高分子材料のみからなる層との間に、金属と高分子材料の成分比が連続的または階段状に変化する中間層を有することにある。

**【0009】**更に、かかる傾斜機能材料において、前記金属が前記高分子材料の熱分解温度より約100°C高い温度以下、より好ましくは、該高分子材料の熱分解温度以下の焼結温度を有するものであることがある。

**【0010】**更に、かかる傾斜機能材料において、前記金属が銅またはアルミニウムであることがある。

**【0011】**更に、かかる傾斜機能材料において、前記熱可塑性を有しない高分子材料が非熱可塑性型のポリイミドであることがある。

**【0012】**次に、本発明に係る傾斜機能材料の製造方法の要旨とするところは、熱可塑性を有しない高分子材料の粉粒体と金属の粉粒体とを異なる比率で混ぜ合わせ、該比率を連続的又は階段状に変化させつつ型内に充填した後、放電プラズマ焼結法により成型することにある。

**【0013】**また、かかる傾斜機能材料の製造方法において、前記高分子材料の粉粒体と金属の粉粒体とを遠心分離法により拡散させながら型内に充填することにある。

**【0014】**更に、かかる傾斜機能材料の製造方法において、前記高分子材料の粉粒体と金属の粉粒体とを振動を加えながら型内に充填することにある。

**【0015】**

【発明の実施の形態】次に、本発明に係る傾斜機能材料とその製造方法の実施の形態を図面を参照しつつ詳しく説明する。

**【0016】**本発明に係る傾斜機能材料は熱可塑性を有しないいわゆる非熱可塑性の高分子材料と金属とからなり、少なくとも、金属のみからなる層、金属と高分子材料の両方を含む層、高分子材料のみからなる層を有して構成され、あるいは金属のみからなる層と高分子材料のみからなる層との間に、金属と高分子材料の成分比が連続的または階段状に変化する中間層を有して構成されている。そして、これらの層はいずれも焼結されて、全体として一体化されて形成されている。

**【0017】**ここで、本発明における傾斜機能材料とは、図1に示すように、複数の成分すなわち成分Aと成

10

20

30

40

50

分Bからなり、各成分A、Bの組成が連続的且つ直線的に変化しているものに限るものではなく、図2に示すように、各成分A、Bの組成が連続的且つ曲線状に変化しているものも含まれる。また、これら各成分A、Bの組成の変化が微小に階段状を成しているものも含まれるものである。更に、図3に示すように、各成分A、Bの組成が階段状に変化しているものも含まれる。そして、図3に示す例示の極端な場合として、成分Aの層と成分Bの層とそれらの中間に両成分を一定の比率で含む層の3層の構造からなるものや、たとえば図4に示すように、成分Aの層と成分Bの層との中間の層において、両成分の比率が連続的に変化するものなども含まれる。その他、たとえば図5に示すように、両端に成分Aのみの層が形成されるとともに、その中間に成分Bのみの層が形成され、これら成分Aのみの層と成分Bのみの層との間に、各成分A、Bの組成が連続的または階段状に変化する層を設けたものも含まれ、更に、各種の例を組み合わせた形態も可能である。以上の構成において、成分Aと成分Bは非熱可塑性の高分子材料と金属のいずれかを示すものである。

**【0018】**本発明の傾斜機能材料を構成する高分子材料として非熱可塑性高分子材料を用いていることにより、熱可塑性樹脂を使った場合に比較して、焼結温度・圧力ともに高く設定することができ、このため、従来の高分子／金属系の傾斜機能材料では用いることのできなかった高い焼結温度の金属を用いることができる。すなわち、非熱可塑性高分子材料の耐熱性自体が高いため、傾斜機能材料としてより高性能なものが得られることになる。

**【0019】**このように、熱可塑性高分子材料を用いた場合に比べて、高い焼結温度が用いられる事になるが、非熱可塑性高分子材料の分解温度を上回る温度で焼結したのでは、出来上がった傾斜機能材料の性能が低下する恐れがある。したがって、非熱可塑性高分子材料の部分にかかる焼結温度は、高分子の分解温度以下とすることが好ましい。ただし、後述するように、放電プラズマ焼結法においては、用いる型の形を工夫することなどにより、金属部分と高分子材料部分との温度に差を生ぜしめることが可能であることから、金属部分の焼結温度を高く設定すると同時に高分子材料部分の焼結温度を低く設定することができ、それぞれより高い焼結温度が使用できることになる。

**【0020】**この金属部分と高分子材料部分との温度差として設定し得る限界は約100°C程度であると考えられ、傾斜機能材料の成分として用い得る金属の焼結温度は、非熱可塑性高分子材料の熱分解温度より約100°C程度高い温度以下、より好ましくは熱分解温度以下であることを必要とする。なお、工業的に有用な非熱可塑性高分子材料の多くは、分解温度が500°C以下であるため、用いる金属の焼結温度は600°C以下が好ましく、

さらには、非熱可塑性高分子材料の熱分解温度以下である500°C以下が好ましい。このような焼結温度を備えた金属として、具体的には、アルミニウム、銅、真鍮、マグネシウムなどがあげられるが、工業的に極めて汎用であるとともに、強度や熱伝導性や電気伝導度の観点から、高分子との組み合わせにおいて高い価値を持つ金属として、特に銅やアルミニウムが好ましく挙げられる。

【0021】なお、ここで、熱可塑性を有しないあるいは非熱可塑性であることとは、たとえば、TMAや動的粘弾性測定装置などにより、明確な融解点や軟化点を検知し難い場合や、動的粘弾性測定装置などにより、明確な融解点や軟化点を検知できても流動性がでるほどの軟化を引き起こさない場合、さらには400°C以上の充分高い温度であって且つ軟化温度と分解温度が近く、従来の成型法では熱的成型が難しい場合などを含むものである。

【0022】より具体的に、非熱可塑性高分子としては、たとえば芳香族ポリイミド、芳香族ポリアミド、各種の芳香族系ラーダーポリマー、あるいは芳香族チアゾール5員環・芳香族オキサゾール5員環・芳香族イミダゾール5員環を含み且つ分子の対称性・剛直性が高く、非熱可塑性を示す高分子、またそれらの共重合体やブレンド体などを挙げることができる。これらの中でも芳香族ポリイミドは、樹脂そのものの優れた耐熱性・耐薬品性・機械的特性・電気的特性などから、金属と組み合わせて傾斜機能材料とした場合に、特に優れた特性を示す。

【0023】これら非熱可塑性高分子材料は言うまでもなく加熱によって可塑性を有しない材料であるため、熱可塑性高分子材料のように加熱溶融させて傾斜機能材料を形成することができない。本発明の傾斜機能材料は非熱可塑性高分子材料を使用して、放電プラズマ焼結法により、低温且つ比較的の低圧で緻密化が可能であることを見いだしたことにより完成したものであり、次に、本発明に係る傾斜機能材料の製造方法について説明する。

【0024】ここで、放電プラズマ焼結法は、圧粉体粒子間隙に直接パルス状の電気エネルギーを投入し、火花放電により瞬時に発生する高温プラズマの高エネルギーを熱拡散・電界拡散などへ効果的に応用することで、低温から2000°C以上の超高温領域において従来の方法

(ホットプレス法)に比べ、はるかに低い温度域で、昇温、保持時間を含め、概ね、5~20分程度の短時間の焼結あるいは焼結接合を可能とする近年実用化された材料合成加工技術である。詳しくは、放電プラズマ焼結法は黒鉛型又は焼結金属、WC系超硬材、BNコンポジットECなどを抵抗体として直接通電によるホットプレスを行うものである。放電プラズマ焼結装置はその一例を図6に示すように、油圧装置10を備えたプレス装置12に下部電極14と上部電極16を配設するとともに下部パンチ18と上部パンチ20を配設し、更に、真空チャンバーや電源装置、各種の制御装置を備えて構成され

ている。そして、型22の中に入れた混合粉粒体24を下部パンチ18と上部パンチ20によって加圧して放電プラズマにより焼結するのである。

【0025】前述のように、型22内に入れられる非熱可塑性高分子材料の層と金属の層との材料層の間で温度差をつけたい場合には、たとえば図7や図8に示されるような異型の型26, 28から成る黒鉛加熱体を用いることにより実現することができる。特に、焼結温度の異なる2つの材料から傾斜機能材料を製造するときには、この種の型を用いる必要がある。

【0026】本発明に係る傾斜機能材料の製造方法は、主に、(1) 粉粒体を混合する工程、(2) 黒鉛型へ粉粒体の混合物を投入する工程、(3) 黒鉛型内の粉粒体の混合物を予備圧縮して成型する工程、(4) 放電プラズマ焼結法により焼結する工程により製造される。この製造方法は場合によつては、(3) の工程を省略することが可能であり、また(1) と(2) の工程を同時に行うことも可能である。

【0027】さらに詳しくは、まず(1) 粉粒体混合工程において、非熱可塑性高分子材料の粉粒体(A成分とする)と金属の粉粒体(B成分とする)とを混合するのであるが、両成分は、できるだけ粒径の分布が小さいものを用いるのがより好ましい。そして、A、B両成分の粉粒体の混合割合を、種々変えることにより任意の組成の混合粉粒体を得ることができる。

【0028】粉粒体の混合割合については、特に限定するものではないが、階段状に成分が変化する傾斜機能材料の製造方法としては、非熱可塑性高分子粉粒体のみからなる層と金属粉粒体のみからなる層との中間に、階段状にたとえば4層の混合層をなす階段状の傾斜機能材料を製造する場合を例に説明する。この場合、たとえば(A成分100%)、(A成分80%: B成分20%)、(A成分60%: B成分40%)、(A成分40%: B成分60%)、(A成分20%: B成分80%)、(B成分100%)の各々の粉粒体とその混合物を調整することにより、各層を形成するための混合粉粒体ができる。調整のための混合機としては、ボールミル、ロッド・ミル、ダブルコートブレンダ、V型混合機などを使用することができる。

【0029】次に、(2) 黒鉛型への粉粒体投入工程において、これら単一の粉粒体及び混合粉粒体を順次黒鉛型に投入するのであるが、この際、各成分を投入する毎に予備加圧を行つた後、次の混合粉粒体を投入するのが好ましい。このように、各成分毎に予備加圧を行うことにより、境界が明確な傾斜機能材料を得ることができが、予備加圧を行なわずに各成分を投入した後、振動などを与えることにより、境界が不明瞭な階段状の傾斜機能材料をうることができる。

【0030】上記は階段状の傾斜機能材料の製造方法であるが、成分の混合比が連続的に変化する傾斜機能材料

を得ることも可能である。たとえば、各成分の混合比をさらに細かく変化させた混合粉粒体を準備することにより、より連続的な機能変化をもたらすことができる。また、たとえば図9に示すように、A成分30とB成分32を連続的に供給量を変化させながら混合装置34に送り込んで攪拌混合し、これを連続的にあるいは極少量づつバッチ式に型36内に投入する方法を取ることもできる。

【0031】あるいは図示を省略するが、密度勾配管を作製する際の方法と同様にして、一定量のA成分を入れられた混合装置に対して少量づつの一定量のB成分を送り込み、混合装置で充分な速度で両成分A、Bの混合を行なながら、同時に連続的に均一な混合粉粒体を型内に送り込む方法でも可能である。

【0032】さらには、遠心分離法によってもA成分とB成分を連続的に変化させることが可能である。すなわち、両成分A、Bを一旦均一に混合した後、型内に入れ、次いで、その型内で両成分A、Bを遠心分離させて、両成分A、Bの混合比に傾斜を形成させるのである。また、他の手法として、A成分とB成分の均一混合粉粒体に振動を与えることにより、重量の重い金属成分を下方に連続的に移動させることにより、両成分A、Bの混合比に傾斜を形成することも可能である。

【0033】このような方法により全粉粒体を投入した後、(4)加圧下で放電プラズマ焼結を行う。焼結時の圧力は10~200MPa、好ましくは20~100MPaである。これより低い圧力であると、焼結体の緻密性に問題が生じ、これより高い圧力では、黒鉛型の耐性に問題が生じる。また、焼結温度は前述のように、非熱可塑性高分子材料の耐熱性すなわち熱分解温度と金属の焼結温度によって適宜決定する。

【0034】この放電プラズマ焼結法は、黒鉛型22に直接通電することによりプラズマを発生させるのであるが、0.1~20V好ましくは1~5Vの電圧値、10~10000A好ましくは10~3000Aの電流値で、mS(ミリセカンド)単位でON、OFF直流バルス通電を繰り返すことでプラズマを発生させて焼結させることができる。ここで、空気中では、酸素・水などが金属や高分子材料に悪影響を及ぼす可能性があり、また、型内のプラズマの発生が阻害されるため緻密な成形が出来ない場合があるため、焼結に先立ち焼結炉を減圧し、焼結時も減圧下で行うのが好ましい。また、同様の理由から、不活性ガス中で行うことも可能である。

【0035】更に、プラズマ焼結を行うのにあたり、型22内の温度を所定温度まで昇温させるのであるが、昇温に際しては最高温度に達するまでに1~15分程度の時間をかけ、最高温度で1~30分間保持した後、徐冷して、型22から焼結された傾斜機能材料を取り出すのである。この際の焼結時における最高温度は、樹脂の分解が起こらない範囲で、充分に緻密な成形が可能な最高

の温度を実験的に見つける必要がある。

【0036】以上のようにして、本発明に係る傾斜機能材料を作製することができ、放電プラズマ焼結法を応用することにより、従来非常に高い耐熱性を有するが熱により軟化しないために成型が困難であった非熱可塑性高分子材料を、非常に低圧力で成型することができ、しかも比較的大型の成型体であっても容易に加工することができる。そして、かかる方法により得られた成型体は、緻密性に優れ容易には欠け等が生じない強固なものである。

【0037】以上、本発明に係る傾斜機能材料およびその製造方法の実施の形態を説明したが、本発明はこれらの実施の形態のみに限定されるものではない。たとえば、上述では2成分について説明したが、3成分以上、たとえば非熱可塑性高分子材料／金属／セラミックの順にそれぞれの粉粒体と混合粉粒体を配設して、放電プラズマ焼結して一体化した傾斜機能材料を得ることも可能である。その他、本発明はその趣旨を逸脱しない範囲内で当業者の知識に基づき、種々なる改良、変更、修正を加えた態様で実施し得るものである。

【0038】以下に、芳香族ポリイミドとアルミニウムを用いた場合の実施例を示し、本発明の内容を具体的に説明するが、本発明はこれら実施例によって限定されるものではない。

#### 【0039】

【実施例】まず、本発明において使用する非熱可塑性高分子材料の1例として使用する芳香族ポリイミド粉体の製造方法について説明する。窒素気流下において、N,N-ジメチルアセトアミド(以下、DMAcとする。)とピリジンの混合溶液中(体積比1:1)で、同モル量の4,4'-ジアミノジフェニルエーテルとピロメリット酸二無水物からポリアミド酸溶液を得る。次に、得られたポリアミド酸溶液を加熱して加熱攪拌を続け、不溶化したポリイミドを粉末として析出させる。放冷後、ろ過して得られた粉末を、DMAc、メタノールの順に洗浄・ろ過を繰り返し、更に、窒素下で、イミド化と乾燥を完了させるため、200°C、20時間加熱処理し、平均粒径30μmの芳香族ポリイミド粉体を得た。

【0040】一方、アルミニウム粉体は、東洋アルミニウム社製のアルミニウムパウダー・AC-2500(平均粒径30μm)を使用した。

【0041】次に、このようにして得られた芳香族ポリイミド粉体とアルミニウム粉体を、配合比を芳香族ポリイミド粉体のみ、また、芳香族ポリイミド粉体/アルミニウム粉体=80/20、同60/40、同40/60、同20/80、アウミニウム粉体のみ(比率は重量比)とした各粉体を320mgづつ準備した。この混合粉体は黒鉛型への投入に先立って、充分に均一になるまで混合を行った。

【0042】次に、これらの粉体について、放電プラズ

マ焼結法により成型を行った。詳しくは、上記の順に内径2cmの円筒形黒鉛型に投入して、各単一の粉体または混合粉体を投入する毎に表面が平坦になるように数MPaの軽圧力をかけた。そして、全ての成分を投入した後、50MPaで加圧し、次いで成形雰囲気を約5Paに減圧して、5V、400Aの電気を通電して放電プラズマ焼結を行った。この際の昇温ステップは、まず、室温から400℃に6分かけて昇温し、さらに420℃まで2分かけて昇温し、420℃で10分間保持した後、約30分間かけて室温にまでもどした。その後、型から焼結されて一体化した傾斜機能材料を取り出した。

【0043】以上のようにして得られた傾斜機能材料について、断面の顕微鏡観察を行ったところ、芳香族ポリイミド層、アルミニウム層、両者の各混合層とともに、緻密な成型状態が確認された。また、この成型体を400℃で30秒間加熱した後、室温まで急冷させたが、形状に変化はなかった。

#### 【0044】

【比較例1】前記実施例と同じアルミニウム粉体と芳香族ポリイミド粉体を用い、型内にアルミニウム粉体を一定量入れた後、軽圧力をかけて表面を平坦にし、次いで、その上に芳香族ポリイミド粉体を同量入れた。その後、実施例と同様にして成型を行った。

【0045】得られた成型体について、実施例と同様、断面の顕微鏡観察を行ったところ、緻密な構造を有した。しかし、同様に、成型体を400℃で30秒間加熱した後、室温まで急冷させたところ、両成分の界面で簡単に剥離してしまった。

#### 【0046】

【比較例2】前記実施例と同様に、アルミニウム粉体と芳香族ポリイミド粉体を用い、単一の粉体と混合粉体とを同じ条件で型に入れた。但し、型として黒鉛型を用いずに金属型を用い、圧力を200MPaに上げて、プラズマ焼結法を用いずに、すなわち通電を行わないで、その他の条件は実施例と同様の方法で成型を行った。しかし、得られた成型体は、緻密性が悪く、脆いものとなつた。

#### 【0047】

【比較例3】芳香族ポリイミド粉体のかわりに、ポリテトラフルオロエチレン粉体を用いた以外は前記実施例と同様に成型を行った。その結果、昇温工程で樹脂が流れ出してしまい、成型体を得ることができなかつた。

#### 【0048】

\* 【発明の効果】本発明に係る傾斜機能材料及びその製造方法は、非熱可塑性高分子材料を用いることにより、焼結温度・圧力ともに熱可塑性樹脂を使った場合に比較して高く設定することができ、このため従来の高分子／金属系の傾斜機能材料では用いることのできなかつた高い焼結温度の金属を用いることができる。したがつて、高い焼結温度の金属を用い、且つ耐熱性の高い非熱可塑性高分子材料を用い、両成分から成る傾斜機能材料を構成することにより、より高機能の成型体を得ることができる。また、焼結にあたつて、放電プラズマ焼結法を用いることによつて、従来考えられていなかつた非熱可塑性高分子材料と金属との傾斜機能材料を緻密に成型することができるうことになった。

【0049】本発明により、耐食性熱交換機、耐摩耗性軸受、電極一体型の絶縁体などの多数の用途において、材料設計の自由度が飛躍的に増大し、航空・宇宙用、化学工業用、機械工業用、電気・電子機器用、原子力発電周辺機器用、研究・実験用などの分野において、幅広い応用が期待できる。更に、耐放射線性を有するポリイミド樹脂粉粒体を用いることにより、耐放射線性が要求される機器用にも使用し得ることになる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】傾斜機能材料の成分比の構成例を示す図である。

【図2】傾斜機能材料の成分比の他の構成例を示す図である。

【図3】傾斜機能材料の成分比の更に他の構成例を示す図である。

【図4】傾斜機能材料の成分比の更に他の構成例を示す図である。

【図5】傾斜機能材料の成分比の更に他の構成例を示す図である。

【図6】放電プラズマ焼結装置の一例を示す説明図である。

【図7】黒鉛加熱体の一例を示す断面説明図である。

【図8】黒鉛加熱体の他の一例を示す断面説明図である。

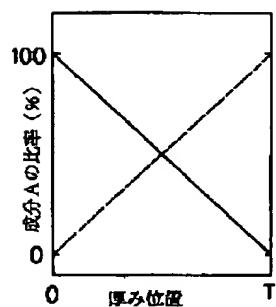
【図9】2成分の混合比を連続的に変化させた傾斜機能材料を製造するための装置の一例を示す説明図である。

#### 【符号の説明】

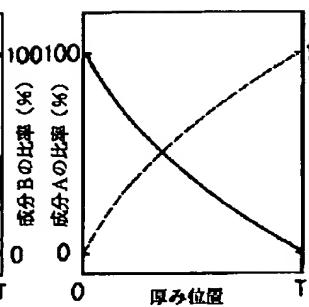
22, 26, 28 : 型

24 : 混合粉粒体

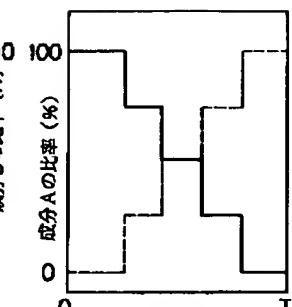
【図1】



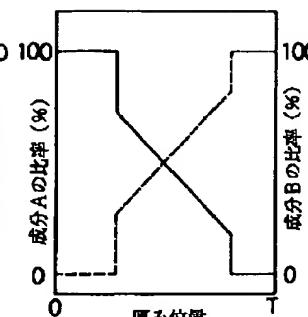
【図2】



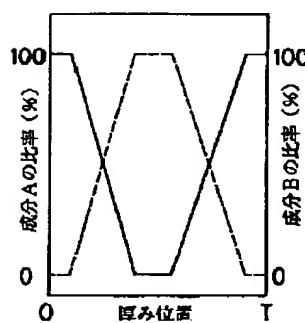
【図3】



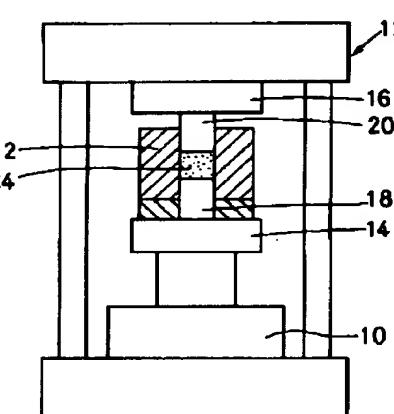
【図4】



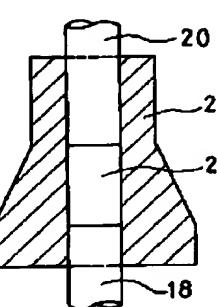
【図5】



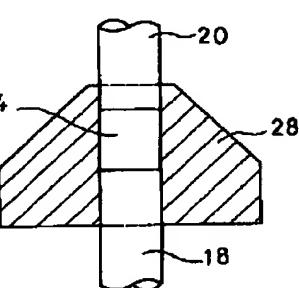
【図6】



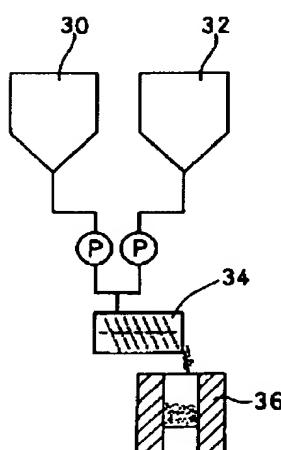
【図7】



【図8】



【図9】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. 6  
C O 8 K 3/08識別記号 庁内整理番号  
K A BF I  
C O 8 K 3/08技術表示箇所  
K A B